

ПЕРЕХОДНЫЕ ПРОЦЕССЫ И ОПТИЧЕСКИЕ УРАВНЕНИЯ БЛОХА

P.H.Шахмуратов

Показано, что аномальное поведение переходных оптических процессов в рубине не связано с изменением фазовой релаксации.

В последнее время появился ряд экспериментальных работ, в которых справедливость оптических уравнений Блоха (ОУБ) и достоверность предположения о неизменности входящих в него времен релаксации подвергаются сомнению. Оказалось, что наблюдаемые ширины дыр $\Delta\nu_D$, которые выжигает лазерное излучение в неоднородно уширенных линиях кристаллов $\text{Pr}^{3+} : \text{LaF}_3$ ¹ и $\text{Cr}^{3+} : \text{Al}_2\text{O}_3$ ^{2,3}, не согласуются с теоретическими предсказаниями, сделанными на основании ОУБ. В этих работах было высказано предположение, что в процессе воздействия мощного лазерного излучения происходит замедление фазовой релаксации и на основании допущения, что время фазовой релаксации T_2 удлиняется до T_1 (времени энергетической релаксации), удалось объяснить наблюдаемые закономерности. Однако непосредственная проверка возможности замедления фазовой релаксации в эксперименте по нутационному эcho дала отрицательный результат⁴. В широком интервале интенсивностей (частота Раби χ , пропорциональная амплитуде поля, менялась от 215 кГц до 1800 кГц) изменение времени фазовой релаксации не наблюдалось. Хотя на том же образце, но при существенно меньших мощностях излучения (частота Раби менялась от 10 до 85 кГц) наблюдалось отклонение ширины выжигаемого провала $\Delta\nu_D$ от предсказываемой ОУБ³. В настоящем сообщении предлагается объяснение наблюдаемых закономерностей на основании следующего предположения. В экспериментах^{2,3} изменение T_2 не происходит, а вся совокупность эффектов обязана неоднозначности определения времени энергетической релаксации.

Для иллюстрации этого предположения рассмотрим фазовую релаксацию примесного иона Cr^{3+} и Al_2O_3 на переходе $(-1/2)^4A_2 - (-1/2)E^2E$. Согласно существующим представлениям она обусловлена флуктуацией магнитных моментов ядер, окружающих парамагнитную примесь. Через суперсверхтонкое взаимодействие (ССТВ) ядра вызывают случайное смещение резонансной частоты иона, ведущее к оптической дефазировке. При этом предполагается, что главную роль играют дальние ядра, поскольку магнитные моменты ближайших к примеси ядер заморожены в силу большого ССТВ. В настоящем сообщении предлагается принципиально новая модель процесса выжигания провала, основанная на модификации механизма дефазировки. Суть ее заключается в следующем. Ядра Al^{2+} , окружающие парамагнитную примесь Cr^{3+} , имеют электрический квадрупольный момент. Его взаимодействие с градиентом внутрикристаллического поля приводит к неэквидистантному расположению уровней энергии ядерных спинов в магнитном поле. Наличие неэквидистантности снимает запрет на взаимные перевороты ближайших к примеси спинов с удаленными ядерными спинами, поскольку имеет место частичное совпадение резонансных частот (в пределах от 3 до 32 кГц) удаленных ядер и N -ядра; N и L -ядра; L и K и т.д. Здесь использовано обозначение ядер, находящихся в неэквивалентных позициях, принятое в работе⁵. В результате диполь–дипольное взаимодействие не испытывает существенного барьера при переносе намагниченности от ближайших соседей к удаленным от примеси ядрам и следовательно возможна флуктуация локального поля на примеси от ближайших соседей. Она ведет к случайному смещению резонансной частоты примеси ω_0 в интервале $(\omega_0 - \Delta/2, \omega_0 + \Delta/2)$, $\Delta = 1,2$ МГц. Другим источником флуктуации могут быть взаимные перевороты неэквивалентно расположенных спинов, происходящие с сохранением полной энергии ближнего окружения. Локальное поле изменяется благодаря преобразованию энергии квадрупольного взаимодействия в энергию ССТВ. Скорость флуктуации ССТВ может быть выше скорости ядерного флип-флоп процесса в объеме, так как

ближайшие ядра сильнее связаны между собой за счет косвенного взаимодействия через параметрмагнитную примесь. Оба процесса приводят к случайному смещению резонансной частоты иона с длинным временем корреляции $\tau_c \gg \Delta^{-1}$, характерным для медленной спектральной диффузии. Следуя ⁶ аппроксимируем изменение частоты некоррелированным разрывным марковским процессом. Тогда все примесные ионы можно разбить на магнитные пакеты, каждый со своим отклонением Δ_i от ω_0 за счет ССТВ. Флип-флоп процессы в данной модели приводят к перебросу иона из i -состояния в j -состояние с отклонением Δ_j . Плотность вероятности переброса в единицу времени определяется величиной $F(\Delta_j)/\tau_c$, где $F(\Delta_j)$ – равновесная функция распределения пакетов. Уравнение, описывающее поведение отдельного пакета в резонансном поле имеет вид:

$$\begin{aligned} \frac{\partial u(\delta, \Delta)}{\partial t} &= -(\delta + \Delta)u(\delta, \Delta) - \frac{1}{\tau_c}u(\delta, \Delta) + \frac{F(\Delta)}{\tau_c} \int u(\delta, \Delta')d\Delta'; \\ \frac{\partial v(\delta, \Delta)}{\partial t} &= (\delta + \Delta)u(\delta, \Delta) + \chi w(\delta, \Delta) - \frac{1}{\tau_c}v(\delta, \Delta) + \frac{F(\Delta)}{\tau_c} \int v(\delta, \Delta')d\Delta'; \\ \frac{\partial w(\delta, \Delta)}{\partial t} &= -\chi v(\delta, \Delta) - \frac{1}{\tau_c}w(\delta, \Delta) + \frac{F(\Delta)}{\tau_c} \int w(\delta, \Delta')d\Delta' - \frac{1}{T_1}[w(\delta, \Delta) + F(\Delta)g(\delta)], \end{aligned} \quad (1)$$

где u , v , w – следующие комбинации элементов матрицы плотности примеси ρ : $w = \rho_{22} - \rho_{11}$; $u + iv = \rho_{12}e^{i\Omega t}$; индексы 1, 2 соответствуют резонансным уровням энергии E_1 , E_2 ; Ω – частота лазерного излучения: $\Delta + \delta = (E_2 - E_1)/\hbar - \Omega$; Δ – рассматриваемая реализация смещения частоты за счет ССТВ; Δ' – все остальные реализации; δ – смещение частоты за счет статического неоднородного уширения, которое определяется функцией распределения $g(\delta)$. В эксперименте ³ использовался источник лазерного излучения с узкой линией $\Delta\nu < 2$ кГц. Поскольку разброс частот $\bar{\Delta}$ за счет ССТВ существенно превышает $\Delta\nu$, $\bar{\tau}_c^1$ и частоту Раби ($\chi < 100$ кГц ³), в образце возбуждается малое число частиц в интервале $|\Delta + \delta| \lesssim \chi$. Поэтому интегралы в правых частях уравнений для u и v компонент (члены "прихода") дают малый вклад порядка $\chi/\bar{\Delta} \ll 1$ по сравнению с членами, описывающими уход примеси из состояния с расстройкой Δ . В уравнении для разности заселенностей w реализуется обратная ситуация – этот интеграл будет с точностью до $\chi/\bar{\Delta}$ равен своему равновесному значению $-g(\delta)F(\Delta)/\tau_c$. Поэтому уравнение (1) можно свести к обычному (дифференциальному) уравнению Блоха с временами релаксации $\widetilde{T}_2 = \tau_c$ и $\widetilde{T}_1 = (\frac{1}{\tau_c} + \frac{1}{\widetilde{T}_2})^{-1}$. Его решение дает следующую зависимость от параметров ширины дыры выжигания: $\Delta\nu_D = (\frac{1}{\widetilde{T}_2^2} + \chi^2 \frac{\widetilde{T}_1}{\widetilde{T}_2})^{1/2}$. Если $\tau_c \ll T_1$, то времена релаксации равны: $\widetilde{T}_1 = \widetilde{T}_2 = \tau_c$. Поэтому в экспериментах ^{2,3} ($\tau_c \ll \bar{\Delta}$) величина $\Delta\nu_D$ почти совпадает с частотой Раби. Напомним, что в работе ¹ предполагалось $\widetilde{T}_2 = T_2$; $\widetilde{T}_1 = T_1$ ($T_2 \ll \widetilde{T}_1$) и следовательно теория предсказывала $\Delta\nu_D \gg \chi$. Наблюдаемое совпадение $\Delta\nu_D$ с χ интерпретировалось как зависимость T_2 от интенсивности: $T_2 \rightarrow T_1$ с ростом χ . В мощных полях, когда частота Раби становится сравнимой с интервалом $\bar{\Delta}$, нельзя пренебрегать интегральными членами в уравнении (1). В этом случае \widetilde{T}_1 удлиняется до T_1 , а время релаксации u -компоненты, входящее в выражение для $\Delta\nu_D$, следующим образом зависит от частоты Раби: $T_{2u} = \tau_c \chi^2 / \bar{\Delta}^2$ ⁷. Откуда следует, что изменение фазовой релаксации в экспериментах по выжиганию провала можно наблюдать только при $\chi > \bar{\Delta}$.

В заключение оценим время корреляции τ_c . Известно ^{8,9}, что если фазовая релаксация обусловлена разрывным марковским процессом, то в случае медленной спектральной диффузии первичное эхо затухает по экспоненциальному закону со временем τ_c в зависимости

от интервала между I и II возбуждающими импульсами. Эхо-эксперимент ³ дал значение $\tau_c = 15$ мкс. Стимулированное эхо в условиях медленной спектральной диффузии при фиксированном интервале между I и II возбуждающими импульсами также затухает по экспоненциальному закону со временем τ_c в зависимости от интервала между II и III возбуждающими импульсами ^{8,9}. Эксперимент по стимулированному эху ¹⁰ дал значение $\tau_c = 20$ мкс близкое к первому ³. Поэтому можно ожидать, что в рубине в сильном магнитном поле при низкой температуре и малой концентрации примеси действительно реализуется медленная спектральная диффузия. В свою очередь тот факт, что нутационное эхо не обнаружило замедления фазовой релаксации, хотя частота Раби достигала больших значений $\chi = 1,8$ МГц ($\chi > \Delta$), можно объяснить тем, что здесь основную роль играет время фазовой релаксации v -компоненты (T_{2v}). Как было показано в работе ⁷, для управления v -релаксацией необходимы существенно большие поля: $\chi > \Delta^2 \tau_c$. Это объясняется тем, что спектральная диффузия нарушает закономерную дефазировку в $w-v$ плоскости и только мощное поле, удовлетворяющее условию: $(\sqrt{\chi^2 + \Delta^2} - \chi) \tau_c \approx \Delta^2 \tau_c / 2\chi \ll 1$, может исключить это нарушение ($\chi > 70$ МГц).

Литература

1. *De Voe R.G., Brewer R.G.* Phys. Rev. Lett., 1983, **50**, 1269.
2. *Endo T. et al.* Opt. Commun., 1984, **51**, 163.
3. *Szabo A., Muramoto T.* Phys. Rev. A, 1989, **39**, 3992.
4. *Muramoto T., Szabo A.* Phys. Rev. A, 1988, **38**, 5928.
5. *Liao P.F., Hartmann S.R.* Phys. Rev. B, 1973, **8**, 69.
6. *Berman P.R., Brewer R.G.* Phys. Rev. A, 1985, **32**, 2784.
7. Кессель А.Р. и др. ЖЭТФ, 1988, **94**, 202.
8. Докторов А.Б., Бурштейн А.И. ЖЭТФ, 1972, **63**, 784.
9. Салихов К.М. и др. Электронное спиновое эхо и его применение, 1976, Новосибирск: Наука.
10. *Nakanishi S. et al.* J. Phys. Soc. Jap., 1978, **45**, 1437.

Физико-технический институт
Казанского научного центра Академии наук СССР

Поступила в редакцию
22 марта 1990 г.